

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
16. Oktober 2003 (16.10.2003)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 03/085418 A2

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: **G01V 5/00**,
G01N 23/222, 23/02, G21B 1/00

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE03/01084

(22) Internationales Anmeldedatum:
2. April 2003 (02.04.2003)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
102 15 070.2 5. April 2002 (05.04.2002) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Aus-
nahme von US): **BUNDESREPUBLIK DEUTSCH-
LAND**, vertr. durch das **BUNDESMINISTERIUM
FÜR WIRTSCHAFT UND TECHNOLOGIE**,
dieses vertr. durch den **PRÄSIDENTEN DER**

**PHYSIKALISCH-TECHNISCHEN BUNDE-
SANSALT [DE/DE]**; Bundesallee 100, 38116 Braun-
schweig (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **RÖTTGER, Ste-
fan [DE/DE]**; Klosterstrasse 18, 38159 Wedtlenstedt
(DE). **KEYSER, Uwe [DE/DE]**; An der Wabe 3, 38104
Braunschweig (DE). **RÖTTGER, Annette [DE/DE]**;
Klosterstrasse 18, 38159 Wedtlenstedt (DE). **ZIMBAL,
Andreas [DE/DE]**; Hinter der Masch 26, 38114 Braun-
schweig (DE).

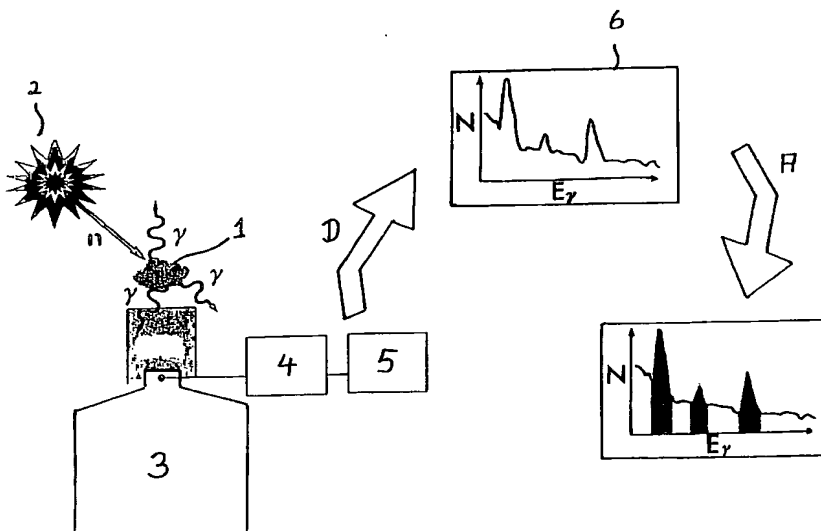
(74) Anwalt: **GERSTEIN, Hans-Joachim**; c/o Gramm, Lins
& Partner GbR, Theodor-Heuss-Strasse 1, 38122 Braun-
schweig (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR PROMPTLY CONDUCTING NON-DESTRUCTIVE CHEMICAL ANALYSIS OF
TEST OBJECTS

(54) Bezeichnung: VERFAHREN UND EINRICHTUNG ZUR PROMPTEN ZERSTÖRUNGSFREIEN CHEMISCHEN ANA-
LYSE VON MESSOBJEKTEN



(57) Abstract: The invention relates to a method for conducting non-destructive chemical analysis of test objects (1) by irradiating the test object (1) with neutrons and measuring the quantity of gamma photon radiation, which is emitted by the test object (1) immediately after irradiation, based on the number of gamma photon quanta of the respective photon energy (E_γ) in order to record a photon energy spectrum (6). The inventive method has the following steps: determining characteristic photon energies (E_γ) based on the gamma photon radiation quantities of the photon energy spectrum (6) which exceed a background photon radiation, and; determining the elements and/or isotopes of the test object (1) by assigning the characteristic photon energies (E_γ) to corresponding elements and/or isotopes that are each stored distinctly at a photon energy (E_γ).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]



CU, CZ, DE (Gebrauchsmuster), DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

- (84) **Bestimmungsstaaten (regional):** ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Erklärungen gemäß Regel 4.17:

- *hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii) für die folgenden Bestimmungsstaaten AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH,*

GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW, ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG)

- *Erfindererklärung (Regel 4.17 Ziffer iv) nur für US*

Veröffentlicht:

- *ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts*

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(57) Zusammenfassung: Ein Verfahren zur zerstörungsfreien chemischen Analyse von Messobjekten (1) durch Bestrahlen des Messobjektes (1) mit Neutronen und Messen der unmittelbar nach dem Bestrahlen von dem Messobjekt (1) emittierten Gamma-Photonenstrahlungsmenge aus der Anzahl von Gamma-Photonenquanten und der jeweiligen Photonenenergie (E_γ) zum Aufnehmen eines Photonenenergiespektrums (6) hat die Schritte: - Ermitteln von charakteristischen Photonenenergien (E_γ) aus den über eine Grundphotonenstrahlung hinausgehenden Gamma-Photonenstrahlungsmengen des Photonenenergiespektrums (6) und - Bestimmen der Elemente und/oder Isotope des Messobjektes (1) durch Zuordnen der charakteristischen Photonenenergien (E_γ) zu entsprechenden jeweils eindeutig zu einer Photonenenergie (E_γ) abgespeicherten Elementen und/oder Isotopen.

Verfahren und Einrichtung zur prompten zerstörungsfreien chemischen Analyse von Messobjekten

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur zerstörungsfreien chemischen Analyse von Messobjekten durch Bestrahlen des Messobjektes mit durch targetfreie Fusion von konzentrisch beschleunigten Deuterium-Ionen generierten Neutronen und Messen der während der Bestrahlung von dem Messobjekt prompt emittierten Gamma-Photonenstrahlungsmenge aus der Anzahl von Gamma-Photonenquanten und der jeweiligen Photonenenergie zum Aufnehmen eines Photonenenergiespektrums.

Die Erfindung betrifft ferner eine Einrichtung zur zerstörungsfreien chemischen Analyse von Messobjekten mit einer Neutronenquelle zum kurzzeitigen Bestrahlen des Messobjektes mit durch targetfreie Fusion von konzentrisch beschleunigten Deuterium-Ionen generierten Neutronen und mit mindestens einem auf das Messobjekt ausgerichteten Photonendetektor zum Messen der unmittelbar nach dem Bestrahlen von dem Messobjekt prompt emittierten Gamma-Photonenstrahlungsmenge aus der Anzahl von Gamma-Photonenquanten und der jeweiligen Photonenenergie.

Zur Element- und Konzentrationsbestimmung ist beispielsweise aus der WO 01/07888A2 und dem US-Patent 5,539,788 die Neutronenaktivierungsanalyse als kernphysikalisches Analyseverfahren bekannt, wobei durch Bestrahlung stabiler Nuklide mit Neutronen zu einem geringen Teil

künstliche radioaktive Nuklide erzeugt werden. Bei dem anschließenden Beta-Zerfall der erzeugten Nuklide werden Elektronen ausgesandt und das Gamma-Spektrum des neutronenaktivierten zu analysierenden Materials gemessen. Aus dem Gamma-Spektrum können Elementkonzentrationen sehr genau bestimmt werden. Bei der Neutronenaktivierungsanalyse ist nachteilig jedoch eine hohe erforderliche Neutronendichte in oder an einem Reaktorkern und damit verbunden eine starke Aktivierung des Messobjektes erforderlich. Zudem lassen sich stabile Elemente mit Ausnahme des letzten stabilen Isotops und wenn die Halbwertszeit ausreichend lang ist nicht nachweisen, da sich diese nach Aufnahme eines Neutrons bei der Aktivierung in ein anderes Isotop oder Element umwandeln.

Verfahren zur Analyse von Substanzen mit Hilfe einer Neutronen-Aktivierungsanalyse sind beispielsweise in dem US-Patent 5,982,838 und der DE 197 45 669 A1 beschrieben. Hierbei werden durch Linienzuordnung und Flächenberechnung aus bestimmten Energieregionen des aufgenommenen Energiespektrums bestimmt.

In Tsahi Gozani: Novel applications of fast neutron interrogation methods in: Nuclear Instruments & Methods in Physics Research A 353 (1994) 635 bis 640 ist ein Verfahren zur γ -Spektralanalyse von Gepäckstücken mit einer NeutronenAktivierungsanalyse unter Verwendung von 14 MeV Neutronen beschrieben. Auch hier werden Spektren untersucht, die auf den Kernreaktionen mit Bildung neuer Radionuklide oder Isomere aufgrund der Neutronenaktivierung basieren.

Zur Bestimmung der Verunreinigung einer Siliziumkugel ist aus A. Paul, S. Röttger, A. Zimbal und U. Keyser: „Prompt (n, γ) Mass Measurements for the AVOGADRO Project“ in: Hyperfine Interactions 132:189-194, 2001

bekannt, eine zu untersuchende Siliziumprobe am Ende eines gekrümmten Neutronenleiters in großem Abstand von einem Reaktorkern den parallelen Strahl thermischer Neutronen einer bekannten Flussdichte ($E < 25 \text{ meV}$) auszusetzen. In der Materialprobe werden die thermischen Neutronen eingefangen und bewirken eine sehr hohe innere Anregung der betroffenen Atomkerne. Hieraus resultiert die sofortige Umordnung der Nukleonen in den neuen, energetisch günstigsten Zustand. Die überschüssige Energie wird durch die prompte Emission elektromagnetischer Strahlung in Form charakteristischer Photonenquanten abgegeben. Aus der Anzahl der Photonenquanten pro Photonenenergie wird ein Photonenenergiespektrum (n, γ - Spektrum) gemessen und die molare Masse der Siliziumkugel aus der emittierten Photonenstrahlungsenergie bestimmt. Eine chemische Analyse des Messobjekts erfolgt jedoch nicht.

Zur chemischen Analyse von Messobjekten zur Bestimmung der Elemente und/oder Isotope werden herkömmlicherweise zerstörende Analysemethoden eingesetzt. Bei der Messung können daher nur Proben relativ aufwendig auf das Vorhandensein einzelner Elemente bzw. Isotope untersucht werden.

Aufgabe der Erfindung war es daher, ein verbessertes Verfahren zur zerstörungsfreien chemischen Analyse von Messobjekten zu schaffen, mit dem sehr einfach und schnell möglichst alle in einem Messobjekt vorhandenen Elemente und/oder Isotope bestimmt werden können.

Die Aufgabe wird mit dem gattungsgemäßen Verfahren erfindungsgemäß gelöst durch

- Ermitteln von charakteristischen Photonenenergien aus den über eine Grundphotonenstrahlung hinausgehenden Gamma-Photonenstrahlungsmengen des gesamten Photonenenergiespektrums mindestens bis zum Bereich von 12 MeV und
- Bestimmen der Elemente und/oder Isotope des Messobjektes durch Zuordnen der über das gesamte Photonenenergiespektrum verteilten charakteristischen Photonenenergien zu entsprechenden jeweils eindeutig zu einer Photonenenergie abgespeicherten Elementen und/oder Isotopen.

Es hat sich überraschend herausgestellt, dass bei einem durch Anregung mit niederenergetischen Neutronen (2,45 MeV) gewonnenen Photonenenergiespektrum jedem Isotop eineindeutig mindestens eine charakteristische Photonenenergie zugeordnet werden kann, wenn das gesamte Photonenenergiespektrum mindestens bis zum Bereich von 12 MeV betrachtet wird. Nach einer Erfassung sämtlicher vorhandener Isotope und deren entsprechenden Photonenenergien ist es daher möglich, aus einem aufgenommenen Photonenenergiespektrum die in einem Messobjekt vorhandenen Elemente und Isotope durch Auswerten der charakteristischen Photonenenergien zu bestimmen. Die mit dem erfindungsgemäßen Verfahren bis 12 MeV ermittelten Photonenenergiespektren sind deshalb vollständig, weil Spektren, die jenseits dieser Größenordnung entstehen, nicht mehr auf die Neutronenbestrahlung zurückgeführt werden können. Grund hierfür sind die Bindungsenergien in den Atomkernen.

Die Anregung niederenergetische Neutronen wird durch targetfreie Fusion von konzentrisch beschleunigten Deuterium-Ionen gewährleistet. Damit wird sichergestellt, dass praktisch keine Kernreaktion mit Bildung neuer Ra-

dionuklide oder Isomere wie bei den oben beschriebenen prompten Neutronen-Aktivierungsanalyseverfahren erfolgt. Die resultierenden Photonenenergiespektren sind damit nicht miteinander vergleichbar. Bei dem durch Anregung mit niederenergetischen Neutronen gewonnenen Photonenenergiespektrum hat sich gezeigt, dass für jedes Isotop charakteristische Energielinien über das gesamte Photonenenergiespektrum verteilt sind. Im Unterschied zum Stand der Technik, bei dem lediglich ein Ausschnitt eines Photonenenergiespektrums nach charakteristischen Energielinien durchsucht wird, erfolgt bei dem erfindungsgemäßen Verfahren eine Analyse des gesamten Photonenenergiespektrums. Hierbei werden alle charakteristischen Energielinien eines Isotops berücksichtigt, da diese über das gesamte Photonenenergiespektrum verteilt sind. Auf diese Weise ist eine eindeutige Analyse möglich. Zudem erfolgt praktisch keine Anregung und Umwandlung der untersuchten Isotope aufgrund der Bestrahlung.

Das Verfahren hat den Vorteil, dass alle in der Natur vorkommenden Isotope nachweisbar sind. Zudem muss das Messobjekt lediglich bestrahlt werden, ohne dass eine vorherige Probenpräparation notwendig ist. Die Probengeometrie und der Aggregatzustand des Messobjektes sind zudem beliebig.

Durch das Aufnehmen eines vollständigen Photonenenergiespektrums mittels Vielkanalmessung werden zudem alle Isotope gleichzeitig gemessen, so dass eine umfassende chemische Analyse sehr schnell erfolgen kann. Aufgrund des quantenphysikalischen Zusammenhangs der Photonenenergie E zur Lichtfrequenz f ($E = h \times f$ mit h = Planksches Wirkungsquantum) entspricht das Photonenenergiespektrum einem aufgenommenen Lichtfrequenzspektrum.

Weiterhin kann vorzugsweise ein quantitatives Bestimmen der chemischen Zusammensetzung des Messobjektes durch Messen des vollständigen messbaren Bereichs des Gamma-Photonenenergiespektrums und Ermitteln der Anteile der bestimmten Elemente und/oder Isotope durch Beziehen der Gamma-Photonenstrahlungsmenge pro Element und/oder Isotop auf die gesamte für alle ermittelten charakteristischen Photonenenergien ermittelte Gamma-Photonenstrahlungsmenge erfolgen.

Die Anzahl der Photonenquanten der einzelnen charakteristischen Photonenenergien, die als Impulsspitzen aus der Kurve des aufgenommenen Photonenenergiespektrums herausragen, werden somit normiert, und es kann auf einfache Weise die prozentuale Verteilung der ermittelten Elemente bzw. Isotope an der gesamten Masse des Messobjektes berechnet werden.

Die Photonenstrahlungsmengen werden vorzugsweise beispielsweise mit bekannten Methoden zur Messkurvenverarbeitung durch Ermitteln der Flächen der charakteristischen Impulskurven des Photonenenergiespektrums an den Bereichen der charakteristischen Photonenenergien bestimmt. Es werden somit die über die Basiskurve des Photonenenergiespektrums hinausragenden Impulsspitzen erkannt und die Flächen unter diesen Impulsspitzen berechnet.

Zur Neutralisierung der Einflüsse der Messumgebung wird vorzugsweise ein Basis-Photonenenergiespektrum des Messraumes ohne das Messobjekt aufgenommen und ein zur Auswertung genutztes Photonenenergiespektrum aus der Differenz zwischen dem zur Analyse aufgenommenen Photonenenergiespektrum und dem Basis-Photonenenergiespektrum berechnet.

Besonders vorteilhaft ist es, Ausschnitte des Messobjektes aus mehreren Richtungen zu bestrahlen und die mehreren Messergebnisse zu ortsabhängigen Analyse des Messobjektes auszuwerten. Das Messobjekt wird auf diese Weise vergleichbar mit einem Tomographie-Gerät abgescannt und liefert eine dreidimensionale Ortsauflösung der Isotopen- bzw. Elementenkonzentration.

Aufgrund der kurzen Bestrahlungszeiten und der geringen erforderlichen Energie der thermischen Neutronen von $E < 25 \text{ meV}$ werden die Messobjekte nicht schädlich beeinflusst, so dass das Verfahren beispielsweise auch zur Untersuchung lebender Objekte eingesetzt werden kann.

Die Aufgabe wird ferner durch die gattungsgemäße Einrichtung gelöst, indem die Neutronenquelle ein neben dem Messobjekt angeordneter Neutronengenerator ist. An dem mindestens einen Photonendetektor ist eine Auswerterecheneinheit gekoppelt, die zur Ermittlung von charakteristischen Photonenenergien aus den über eine Grundphotonenstrahlung hinausgehenden Gamma-Photonenstrahlungsmengen des Photonenenergiespektrums und zum Bestimmen der Elemente und/oder Isotope des Messobjektes durch Zuordnen der charakteristischen Photonenenergien zur entsprechenden jeweils eindeutig zu einer Photonenenergie abgespeicherten Elementen und/oder Isotopen ausgebildet ist.

Im Unterschied zu den bekannten Einrichtungen wird somit kein Forschungsreaktor sondern ein kompakter, vorzugsweise mobiler, Neutronengenerator eingesetzt. Die chemische Analyse kann auf diese Weise erstmalig in Messlabors und im direkten Produktionsbetrieb eingesetzt werden. Beispielsweise kann die Qualität und Zusammensetzung von Massengütern auf einem Förderband mit Hilfe der Einrichtung kontinuierlich überwacht

werden, wobei die Massengutströme qualitätsabhängig umgelenkt werden können.

Weiter ist es vorteilhaft, wenn der mindestens eine Photonendetektor mit Mitteln zur Absorption von Neutronen geschirmt ist. Auf diese Weise kann der Streueinfluss von Photonen, die nicht von dem Messobjekt emittiert werden, reduziert und der Photonendetektor möglichst genau auf das Messobjekt ausgerichtet werden.

Weiterhin ist vorzugsweise ein Fokussierelement zwischen dem Neutronengenerator und dem Messobjekt vorgesehen, dass zur thermischen Anpassung der Neutronen ausgebildet ist. Auf diese Weise wird die Neutronengeschwindigkeit beispielsweise an die Brownsche Bewegung der Luft angepasst, so dass im Neutronenstrahl nahezu ausschließlich thermische Neutronen vorhanden sind.

Das Fokussierelement kann beispielsweise als neutronenabsorbierende Platte mit einer Durchlassbohrung ausgebildet sein.

Ein geeignetes Material für die Schirmung des Neutronendetektors und das Fokussierelement sind alle Materialien mit einem hohen Neutroneneinfangquerschnitt.

Die Erfindung wird nachfolgend anhand der beigefügten Zeichnungen näher erläutert. Es zeigen:

- Fig. 1 - ein Prinzip-Blockdiagramm des erfindungsgemäßen Verfahrens zur zerstörungsfreien chemischen Analyse;
- Fig. 2 - eine schematische Darstellung des Eintauchens eines Neutrons in einen Atomkern und des Aussendens von Gamma-Photonenenergie;
- Fig. 3 - einen Ausschnitt eines aufgenommenen Gamma-Photonenenergiespektrums;
- Fig. 4 - ein Blockdiagramm einer erfindungsgemäßen Einrichtung zur zerstörungsfreien chemischen Analyse.

Die Figur 1 lässt ein schematisches Blockdiagramm des erfindungsgemäßen Verfahrens zur zerstörungsfreien chemischen Analyse von Messobjekten 1 erkennen. Das Messobjekt 1 wird kurzzeitig oder kontinuierlich mit Hilfe einer in der Nähe des Messobjektes 1 angeordneten Neutronenquelle 2 mit Neutronen n bestrahlt, die jeweils in die Atomkerne eintauchen. Hierbei wird Gamma-Photonenenergie E_γ ausgesendet. Ein Teil der ausgesendeten Gamma-Photonenquanten wird mit einem Gamma-Photonendetektor 3 gemessen und über eine an sich bekannte Messelektronik 4 an eine Auswerterecheneinheit 5 geleitet.

Dort wird zunächst im Schritt einer Datenaufnahme D ein Photonenenergiespektrum 6 aufgenommen, indem die Anzahl N von Photonenquanten über die jeweilige Photonenenergie E_γ aufgetragen wird.

In einem Schritt der Auswertung A werden charakteristische Photonenenergien E_γ als über eine Grundphotonenstrahlung hinausgehende Gamma-Photonenstrahlungsmenge des Photonenenergiespektrums 6 ermittelt, indem die Impulsspitzen beispielsweise mittels bekannter Signalkurvenauswertemethoden detektiert werden. Aus den charakteristischen Photonenenergien E_γ wird dann durch Zuordnung zu den entsprechenden jeweils eindeutig zu einer Photonenenergie abgespeicherten bekannten Elementen und/oder Isotopen die in dem Messobjekt 1 vorhandenen Elemente und/oder Isotope bestimmt.

Es ist weiterhin erkennbar, dass die Flächen unterhalb der charakteristischen Impulskurven des Photonenenergiespektrums an den Bereichen der charakteristischen Photonenenergien E_γ ermittelt werden. Durch Normierung der Flächen können dann die Anteile der Elemente an der Gesamtmasse des Messobjekts 1 sehr genau bestimmt werden, da das aufgenommene Photonenenergiespektrum 6 sämtliche bekannten Elemente und/oder Isotope berücksichtigt.

Damit kann mit einer einzigen Messung eine vollständige chemische Analyse des Messobjektes 1 vorgenommen werden, ohne dass das Messobjekt 1 präpariert werden muss oder einer Untersuchung ein auf das Vorhandensein einzelner Elemente bzw. Isotope erforderlich ist.

Die Figur 2 lässt das dem Verfahren zugrundeliegende physikalische Grundprinzip in schematischer Darstellung erkennen. Beim Eintauchen eines Neutrons n in einen Atomkern AX wird der Atomkern $^{A+1}X^*$ stark angeregt. Hieraus resultiert eine sofortige Umordnung der Nukleonen in einen neuen, energetisch günstigsten Zustand ^{A+1}X , wobei die überschüssige Energie

durch prompte Emission elektromagnetischer Strahlung in Form charakteristischer Gamma-Photonenquanten mit einer Gamma-Photonenenergie E_γ abgegeben wird. Die Gamma-Photonenenergie E_γ ist die Differenz aus der Bindungsenergie E_B und der Rückwandlungsenergie E_R zum Annehmen des neuen Zustands des Atomkerns.

Der dargestellte prompte Vorgang dauert längstens 10^{-17} Sekunden vom Eintauchen des Neutrons in den Atomkern an.

Die Figur 3 lässt ein mit dem Verfahren aufgenommenes beispielhaftes Gamma-Photonenenergiespektrum mit charakteristischen Impulskurven bei charakteristischen Photonenenergien von 380,99 keV, 393,65 keV, 411,80 keV, 418,59 keV, 440,08 keV und 444,15 keV erkennen. Aus den unterhalb dieser charakteristischen Impulskurven liegenden Flächen wird die Photonenanzahl N bestimmt.

Unter der Annahme, dass das Photonenenergiespektrum vollständig ist, kann zudem durch Normieren der einzelnen Photonenmengen pro charakteristischer Photonenenergie E_γ ein Anteil des zugehörigen Elements an der Gesamtmasse des Messobjektes 1 berechnet werden, da die Impulshöhen sämtliche vorhandenen Elemente bzw. Isotope des Messobjektes 1 wiedergeben und die Summe der ermittelten Flächen der charakteristischen Impulskurven die vollständige Masse (100 %) des Messobjektes 1 ausmachen. Unterhalb des Diagramms ist die zu dem Photonenenergiespektrum gehörige Standardabweichung aufgetragen.

Die Figur 4 lässt ein Blockdiagramm einer erfindungsgemäßen Einrichtung zur zerstörungsfreien chemischen Analyse eines Messobjektes 1 erkennen. In der Nähe des Messobjektes 1 ist ein vorzugsweise tragbarer Neutronen-

generator 2 angeordnet, dessen Neutronenstrahl n auf das Messobjekt 1 gerichtet ist. Zwischen dem Neutronengenerator 2 und dem Messobjekt 1 befindet sich ein Neutronenmoderator 7, zur Anpassung der Neutronengeschwindigkeit, um thermische Neutronen n zu erzeugen, die an die Brownsche Bewegung der Luft angepasst sind, und ein Fokussiermittel 8, um den Neutronenstrahl n zu fokussieren:

Angrenzend an das Messobjekt 1 ist ein Gamma-Photonendetektor 3 angeordnet, der auf das Messobjekt 1 ausgerichtet und zur Aufnahme eines Photonenenergiespektrums ausgebildet ist. Mit Hilfe einer Vielkanalmessung wird somit die Anzahl der Photonenquanten in Abhängigkeit von der jeweiligen Photonenenergie E_γ bzw. der Lichtfrequenz ν der Photonen gemessen und einer Auswerterecheneinheit 5 zugeführt. Der mindestens eine Photonendetektor 3 ist seitlich mit einer Abschirmung 9 versehen, um Störstrahlungseinflüsse zu reduzieren.

Als Material für den Neutronenmoderator 7, das Fokussiermittel 8 und die Abschirmung 9 eignen sich alle Materialien mit kleiner Ordnungszahl und kleinem Einfangquerschnitt, beispielsweise Polyethylen, das mit einem Katalysator versetzt ist. Das Fokussiermittel 7 ist beispielsweise als Platte mit einem Loch ausgebildet.

Die Auswerterecheneinheit 5 ist beispielsweise programmtechnisch zur Ermittlung der charakteristischen Photonenenergien E_γ aus den über eine Grundphotonenstrahlung hinausgehenden Photonenstrahlungsmengen des Photonenenergiespektrums mittels Signalanalyse ausgebildet. Die Auswerterecheneinheit 5 greift auf eine abgespeicherte Tabelle 10 zu, in der die charakteristischen Photonenenergien E_γ sämtlicher bekannter Isotope und damit auch der Elemente abgelegt sind. Durch Korrelation der ermittelten

charakteristischen Photonenenergien E_γ mit den in der Tabelle 10 abgespeicherten Photonenenergien E_γ für die Isotope kann nun eindeutig aus dem Photonenenergiespektrum auf die chemische Zusammensetzung des Messobjektes 1 geschlossen werden. Durch Auswertung der ausgestrahlten Photonenmenge pro charakteristischer Photonenenergie E_γ kann zudem auch der Anteil der einzelnen Isotope an der betrachteten Gesamtmasse hochgenau bestimmt werden.

Besonders vorteilhaft ist es, wenn das Messobjekt 1 mit Hilfe einer dreidimensionalen Messung abgescannt wird, so dass ähnlich wie bei einem Tomographie verfahren eine Ortsanalyse durchgeführt werden kann.

Vorzugsweise kann die Erfindung überall dort eingesetzt werden, wo es um einen qualitativen und/oder quantitativen Isotopen- oder Elementnachweis von Proben beliebigen Aggregatzustands und beliebiger Geometrie geht. Dies ist insbesondere bei der Prospektion von Rohstoffen, der Materialanalytik, der Qualitätskontrolle und Qualitätssicherung, im investigativen und forensischen Bereich (Beweissicherung, Spurennachweis), beim Nachweis von Waffen und Sprengstoff an Flughäfen sowie bei der Reinstoffanalytik in der chemischen Industrie der Fall.

Ansprüche

1. Verfahren zur zerstörungsfreien chemischen Analyse von Messobjekten (1) durch Bestrahlen des Messobjektes (1) mit durch targetfreie Fusion von konzentrisch beschleunigten Deuterium-Ionen generierten Neutronen n und Messen der während der Bestrahlung von dem Messobjekt (1) prompt emittierten Gamma-Photonenstrahlungsmenge aus der Anzahl von Gamma-Photonenquanten und der jeweiligen Photonenenergie (E_γ) zum Aufnehmen eines Photonenenergiespektrums (6), **gekennzeichnet durch**
 - Ermitteln von charakteristischen Photonenenergien (E_γ) aus den über eine Untergrundphotonenstrahlung hinausgehenden Gamma-Photonenstrahlungsmengen des gesamten Photonenenergiespektrums (6) mindestens bis zum Bereich von 12 MeV und
 - Bestimmen der Elemente und/oder Isotope des Messobjektes (1) durch Zuordnen der über das gesamte Photonenenergiespektrum (6) verteilten charakteristischen Photonenenergien (E_γ) zu entsprechenden jeweils eindeutig zu einer Photonenenergie (E_γ) abgespeicherten Elementen und/oder Isotopen.
2. Verfahren nach Anspruch 1, **gekennzeichnet durch** quantitatives Bestimmen der chemischen Elementzusammensetzung des Messobjektes (1) durch Messen des vollständigen messbaren Bereichs des Photonenenergiespektrums (6) und Ermitteln der Anteile der bestimmten Elemente und/oder Isotope durch Beziehen der Gamma-Photonenstrahlungsmenge pro Element und/oder Isotop auf die ge-

samte für alle ermittelten charakteristischen Photonenenergien (E_γ) ermittelte Photonenstrahlungsmenge.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, **gekennzeichnet durch** Bestimmen der Gamma-Photonenstrahlungsmengen durch Ermitteln der Flächen der charakteristischen Impulskurven des Photonenenergiespektrums (6) an den Bereichen der charakteristischen Photonenenergien (E_γ).
4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **gekennzeichnet durch** Aufnehmen eines Basis-Photonenenergiespektrums des Messraumes ohne das Messobjekt (1) und Berechnen eines zur Auswertung genutzten Photonenenergiespektrums (6) aus der Differenz zwischen dem zur Analyse aufgenommenen Photonenenergiespektrum (6) und dem Basis-Photonenenergiespektrum.
5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **gekennzeichnet durch** Bestrahlen von Ausschnitten des Messobjektes (1) aus mehreren Richtungen und Auswerten der mehreren Messergebnisse zur ortsabhängigen Analyse des Messobjektes (1).
6. Einrichtung zur zerstörungsfreien chemischen Analyse von Messobjekten (1) mit einer Neutronenquelle (2) zum kurzzeitigen Bestrahlen des Messobjektes (1) mit Neutronen (n) und mit mindestens einem auf das Messobjekt (1) ausgerichteten Photonendetektor (3) zum Messen der prompt nach dem Bestrahlen von den Messobjekt (1) emittierten Gamma-Photonenstrahlungsmenge aus der Anzahl von Photonenquanten und der jeweiligen Photonenenergie (E_γ), **dadurch gekennzeichnet, dass** die Neutronenquelle (2) ein neben dem Messobjekt (1) angeordneter Neutronengenerator (2) ist und eine

Auswerterecheneinheit (5) an den mindestens einen Photonendetektor (3) gekoppelt ist, wobei die Auswerterecheneinheit (5) zur Durchführung des Verfahrens nach einem der vorhergehenden Ansprüche ausgebildet ist.

7. Einrichtung nach Anspruch 6, **dadurch gekennzeichnet**, dass der Neutronengenerator (2) mobil ist.
8. Einrichtung nach Anspruch 6 oder 7, **dadurch gekennzeichnet**, dass der mindestens eine Photonendetektor (3) mit Mitteln zur Absorption von Neutronen (n) geschirmt ist.
9. Einrichtung nach einem der Ansprüche 6 bis 8, **gekennzeichnet** durch ein Fokussierelement zwischen dem Neutronengenerator (2) und dem Messobjekt (1), wobei das Fokussierelement zur thermischen Anpassung der Neutronen (n) ausgebildet ist.
10. Computerprogramm mit Programmcodemitteln zur Durchführung des Verfahrens nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wenn das Computerprogramm auf einem Computer ausgeführt wird.
11. Computerprogramm nach Anspruch 10 mit einer Datenbank, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Datenbank die charakteristischen Photonenenergien (E_γ) der Elemente und/oder Isotope enthält.
12. Computerprogramm mit Programmcodemitteln gemäß Anspruch 10 oder 11, die auf einem computerlesbaren Datenträger gespeichert sind.

13. Datenbank mit einer Vielzahl von Einträgen charakteristischer Photonenenergien (E_γ) bezogen auf zugehörige Elemente und/oder Isotope zur Verwendung zur Durchführung des Verfahrens nach einem der vorhergehenden Ansprüche.

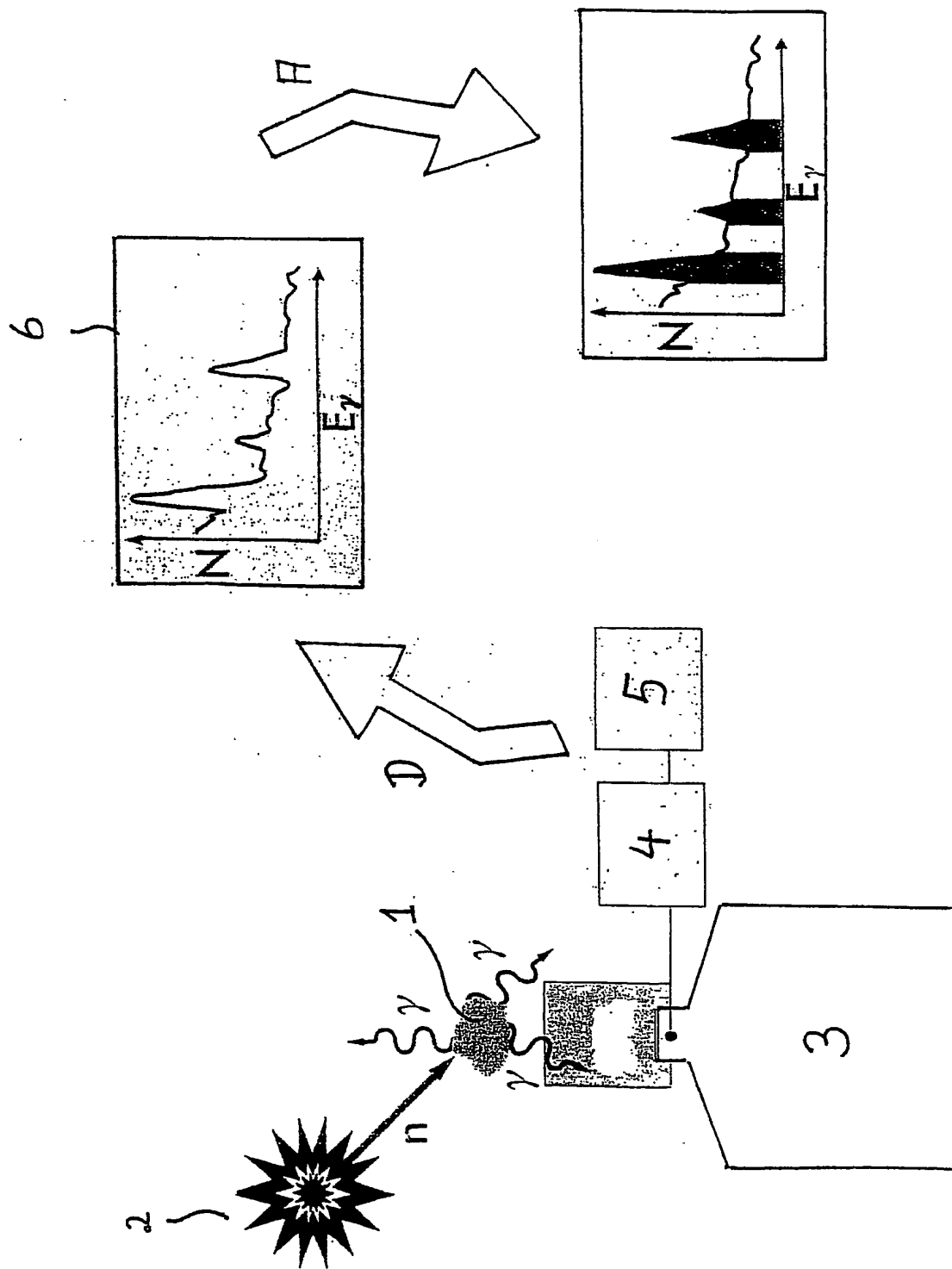


Fig. 1

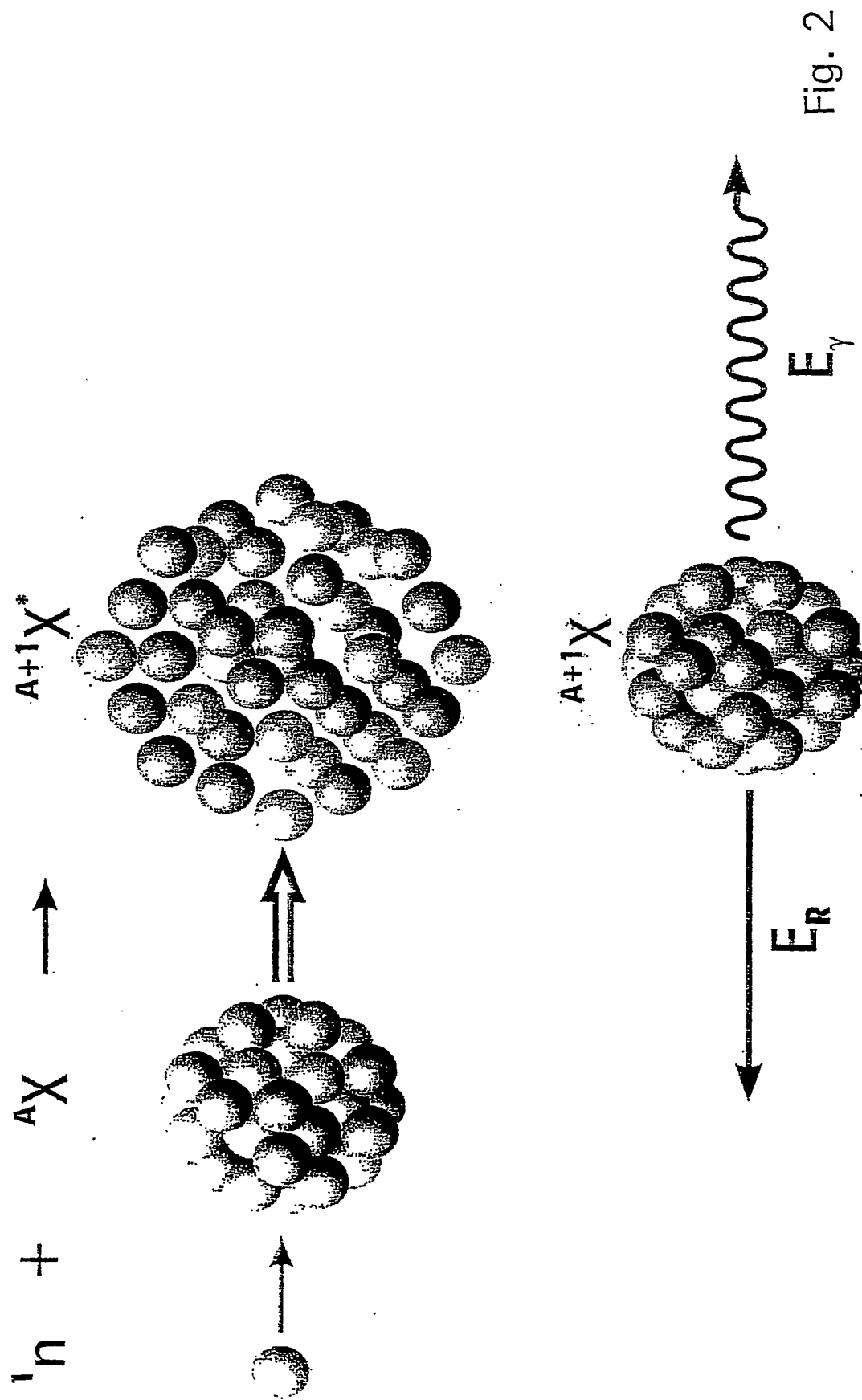


Fig. 2

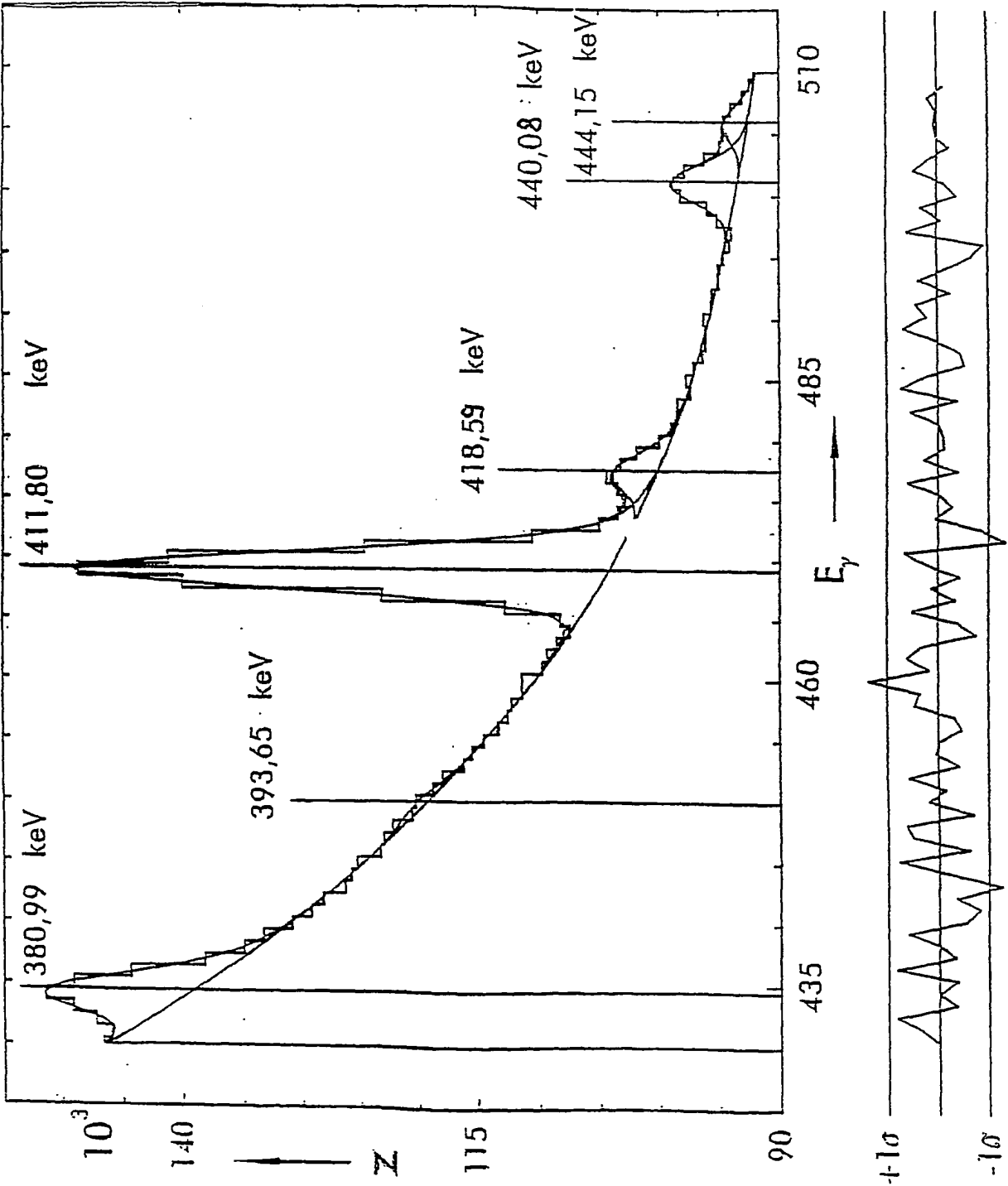


Fig. 3

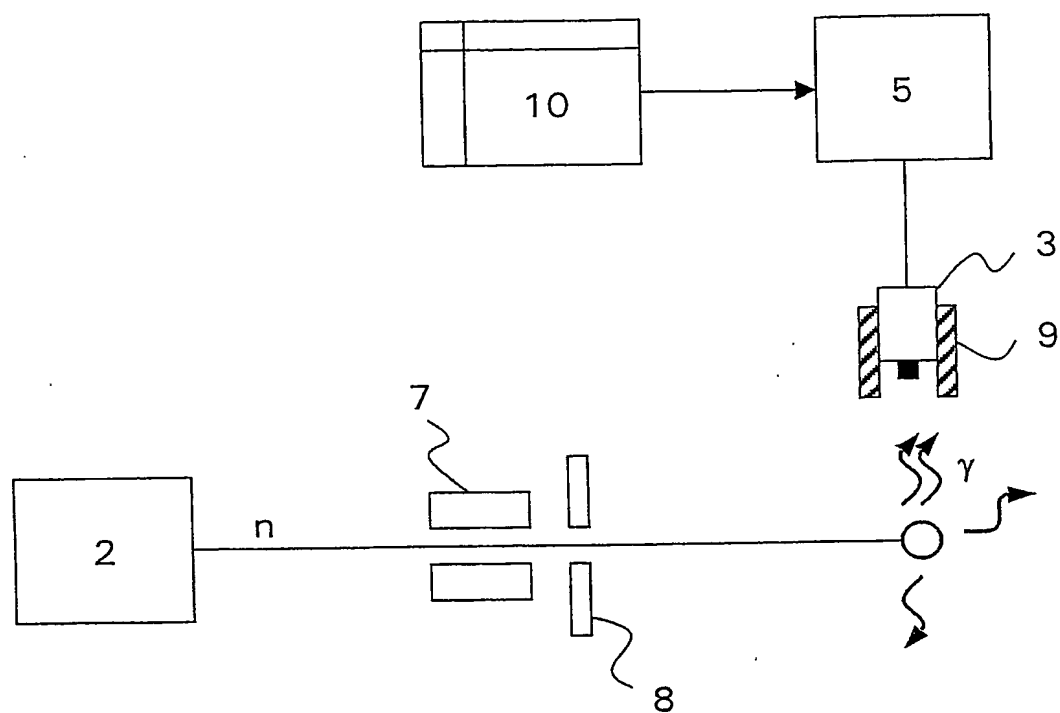


Fig. 4